

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2000-103653
(P2000-103653A)

(43) 公開日 平成12年4月11日 (2000.4.11)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	ターム(参考)
C 0 3 C 27/12		C 0 3 C 27/12	D 4 G 0 6 1
C 0 8 K 5/098		C 0 8 K 5/098	4 J 0 0 2
5/10		5/10	
C 0 8 L 29/14		C 0 8 L 29/14	

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 8 頁)

(21) 出願番号	特願平10-275212	(71) 出願人	000002174 積水化学工業株式会社 大阪府大阪市北区西天満 2 丁目 4 番 4 号
(22) 出願日	平成10年9月29日 (1998.9.29)	(72) 発明者	江口 勇司 滋賀県甲賀郡水口町泉1259 積水化学工業株式会社内
		F ターム(参考)	4G061 AA03 AA04 AA13 AA18 BA01 BA02 CB05 CB16 CB19 CD02 CD18 4J002 BE061 EQ037 EH046 EH086 EH146 GF00

(54) 【発明の名称】 中間膜用組成物、合わせガラス用中間膜及び合わせガラス

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 中間膜とガラスとの接着力が初期及び経時後のいずれにおいても適正な範囲内に保持されている合わせガラス用中間膜を得るに適する中間膜用組成物及びその組成物を用いて製せられる合わせガラス用中間膜並びにその中間膜を用いて製せられる合わせガラスを提供する。

【解決手段】 ポリビニルブチラル樹脂 100 重量部に対し、トリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート 20～60 重量部が含有されてなる中間膜用組成物であって、上記トリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート 100 重量部に対し上記ポリビニルブチラル樹脂 8 重量部を溶解して得られる溶液の曇り点が 90～130℃であることを特徴とする中間膜用組成物、上記中間膜用組成物が製膜されてなることを特徴とする合わせガラス用中間膜及び少なくとも一対のガラス間に、上記合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする合わせガラス。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 ポリビニルブチラール樹脂 100 重量部に対し、トリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート 20～60 重量部が含有されてなる中間膜用組成物であって、上記トリエチレングリコールジ 2-エチルヘキサノエート 100 重量部に対し上記ポリビニルブチラール樹脂 8 重量部を溶解して得られる溶液の曇り点が 90～130℃であることを特徴とする中間膜用組成物。

【請求項 2】 ポリビニルブチラール樹脂の平均ブチラール化度が 65～72 モル%であることを特徴とする請求項 1 に記載の中間膜用組成物。

【請求項 3】 炭素数 2～10 のカルボン酸のマグネシウム塩が含有されていることを特徴とする請求項 1 又は請求項 2 に記載の中間膜用組成物。

【請求項 4】 請求項 1～請求項 3 のいずれかに記載の中間膜用組成物が製膜されてなることを特徴とする合わせガラス用中間膜。

【請求項 5】 少なくとも一対のガラス間に、請求項 4 に記載の合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする合わせガラス。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、合わせガラス用の中間膜用組成物、その組成物を用いて製せられた合わせガラス用中間膜、及び、その中間膜を用いて製せられた合わせガラスに関する。

【0002】

【従来の技術】 従来より、合わせガラスは、自動車のフロントガラス用やサイドガラス用として、或いは、建築物の窓ガラス用等として広く使用されている。上記合わせガラスの代表例としては、少なくとも二枚のガラスの間に、可塑剤により可塑化されたポリビニルブチラール樹脂（中間膜用組成物）を製膜して得られた合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させて製せられるものが挙げられる。

【0003】 このような合わせガラスは、これに衝撃が加えられるとガラスは破損するものの、ガラス間に介在させた中間膜は容易に破損せず、又、ガラスは破損後においても中間膜に貼着したままであるため、その破片が飛散することが少なく、従って、自動車や建築物の内部にある人体がガラスの破片によって傷害を受けることを防止する機能を有する。

【0004】 ところで、上記合わせガラス用中間膜を製作するために用いられる中間膜用組成物においては、ポリビニルブチラール樹脂と可塑剤との相溶性が優れていることが重要である。

【0005】 ポリビニルブチラール樹脂と可塑剤との相溶性は、ポリビニルブチラール樹脂のブチラール化度や可塑剤の種類等によって大きく左右されるが、この両者

の相溶性が悪い場合には、得られる中間膜の表面に可塑剤がブリードアウトして、中間膜の保管時や輸送時における耐ブロッキング性が悪くなったり、中間膜が吸湿による白化現象を起こし、優れた性能の合わせガラスを得られないという欠点が生じる。

【0006】 従来、上記ポリビニルブチラール樹脂と可塑剤との相溶性の評価は、例えば、特開昭 56-36432 号公報の実施例中で開示されているように、「ポリビニルブチラール樹脂と可塑剤とからなる樹脂組成物を先ずフィルム状に製膜した後、そのフィルム表面への可塑剤のブリードアウトの有無やフィルムの白化現象の有無等を確認する」ことによって行われるのが一般的であった。

【0007】 しかし、上記従来の評価方法では、樹脂組成物を予めフィルム状に製膜する必要があるため、評価に用いるポリビニルブチラール樹脂や可塑剤の必要量が多くなったり、製膜作業や評価そのものに多くの時間を要する等の問題点があり、簡便な評価方法とは言えなかった。

【0008】 又、合わせガラス用中間膜を用いて合わせガラスを作製する場合には、合わせガラスの端部から中間膜がはみ出した部分（トリム部分）が発生するが、従来の中間膜で用いられているような沸点の比較的低い可塑剤を用いると、トリム部分から可塑剤が蒸発してトリム部分が硬くなり、トリムのカットによる除去性（トリムカット性）が悪くなるという問題点がある。

【0009】 さらに、一般的に、合わせガラスとしての機能を十分に発揮させるためには、中間膜とガラスとの接着力が高ければ高いほど良いわけではなく、この接着力をある適正な範囲内に調整することが必要である。

【0010】 上記接着力の適正な範囲内への調整は、例えば、自動車事故等においては運転者や乗客等がガラスへ衝突する時の衝撃吸収や貫通防止のために必要であり、又、例えば、建築物においては外部からの飛来物の貫通防止やガラスの飛散防止のために必要である。

【0011】 即ち、中間膜とガラスとの接着力が小さ過ぎる場合には、ガラスが中間膜から剥がれ、その破片が飛散し易くなるという問題が発生し、逆に、中間膜とガラスとの接着力が大き過ぎる場合には、ガラスと中間膜とが同時に破損して、人体や外部からの飛来物等が貫通し易くなるという問題が発生する。

【0012】 これに対し、中間膜とガラスとの接着力が適正な範囲内にある場合には、ガラスの破損が広範囲にわたって起こると共に、ガラスが破損すると同時に中間膜とガラスとの部分的な界面剥離が起こり、且つ、中間膜が延伸するという現象が生じるため、衝撃吸収効果や貫通防止効果が大きくなる。

【0013】 上記に鑑み、従来より、中間膜とガラスとの接着力を適正な範囲内に調整するために、中間膜用の接着力調整剤が種々検討されてきた。

【0014】例えば、特公昭48-5772号公報では、「少なくとも2枚のガラスを可塑性ポリビニルアセタール樹脂組成物で貼り合わせたガラスにおいて、該可塑性ポリビニルアセタール樹脂組成物中に炭素数10～22の脂肪族カルボン酸のナトリウム金属塩を含有せしめたことを特徴とする合わせガラス」が開示されている。

【0015】しかし、上記開示による合わせガラスでは、接着剤調整剤として比較的炭素数の大きいカルボン酸の金属塩を用いているので、中間膜とガラスとの接着力が時間経過（経時）とともに変化するという問題点がある。即ち、初期の接着力は適正であっても、経時とともに次第に接着力が低下もしくは昂進し、衝撃を受けた時にガラスが剥離し易くなるか、逆に剥離し難くなる。この接着力変化を防止するためには、中間膜を例えば40～50℃の雰囲気下で1～2ヶ月間保管して熟成する必要があるが、中間膜は粘着性や自着性等を有するため、上記のような雰囲気下で長期間保管することは現実的には困難であり、又、仮に熟成を行ったとしても、接着力の経時変化を抑制することは出来るが皆無にすることは出来ず、上記問題点は依然として残る。

【0016】

【発明が解決しようとする課題】本発明は、上記従来の問題点を解決するため、ポリビニルブチラール樹脂と可塑性との相溶性を簡便な方法で事前に評価することにより、中間膜表面への可塑性のブリードアウトの発生や中間膜の耐ブロッキング性の低下及び中間膜の吸湿による白化現象の発生等を未然に防止することが可能であると共に、トリムカット性に優れ、且つ、中間膜とガラスとの接着力が初期及び経時後のいずれにおいても適正な範囲内に保持されている合わせガラス用中間膜を得るに適する中間膜用組成物及びその組成物を用いて製せられる合わせガラス用中間膜並びにその中間膜を用いて製せられる合わせガラスを提供することを課題とする。

【0017】

【課題を解決するための手段】請求項1に記載の発明（以下、「第1発明」と記す）による中間膜用組成物は、ポリビニルブチラール樹脂100重量部に対し、トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート20～60重量部が含有されてなり、且つ、上記トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート100重量部に対し上記ポリビニルブチラール樹脂8重量部を溶解して得られる溶液の曇り点が90～130℃であることを特徴とする。

【0018】請求項2に記載の発明（以下、「第2発明」と記す）による中間膜用組成物は、上記第1発明による中間膜用組成物において、ポリビニルブチラール樹脂の平均ブチラール化度が65～72モル%であることを特徴とする。

【0019】請求項3に記載の発明（以下、「第3発

明」と記す）による中間膜用組成物は、上記第1発明又は第2発明による中間膜用組成物において、炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩が含有されていることを特徴とする。

【0020】又、請求項4に記載の発明（以下、「第4発明」と記す）による合わせガラス用中間膜は、上記第1発明～第3発明のいずれかによる中間膜用組成物が製膜されてなることを特徴とする。

10 【0021】さらに、請求項5に記載の発明（以下、「第5発明」と記す）による合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に、上記第4発明による合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする。

【0022】第1発明による中間膜用組成物に主成分として含有されるポリビニルブチラール樹脂（以下、「PVB」と記す）の製造方法としては、特に限定されるものではないが、例えば、ポリビニルアルコール（以下、「PVA」と記す）を温水に溶解し、得られた水溶液を所定の温度、例えば0～95℃に保持しておいて、酸触媒及びブチルアルデヒドを加え、攪拌しながらブチラール化反応を進行させ、次いで反応温度を上げて熟成することにより反応を完結させ、その後、中和、水洗及び乾燥を行ってPVBの粉末を得る、いわゆる沈殿法等が好適に採用される。

【0023】上記PVBの製造に用いられるPVAの平均重合度は、特に限定されるものではないが、500～3000であることが好ましく、より好ましくは1000～2500である。PVAの平均重合度が500未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が不十分となることがあり、逆にPVAの平均重合度が3000を超えると、中間膜の製造が難しくなることがある。又、上記PVAの鹸化度は、特に限定されるものではないが、70モル%以上であることが好ましい。PVAの鹸化度が70モル%未満であると、得られる中間膜や合わせガラスの透明性や耐熱性等が不十分となることがある。

【0024】尚、上記PVAの平均重合度及び鹸化度は、JIS K-6726「ポリビニルアルコール試験方法」に準拠して測定することが出来る。

40 【0025】上記で得られるPVBの平均ブチラール化度は、特に限定されるものではないが、40～75モル%であることが好ましく、より好ましくは65～72モル%である。

【0026】上記PVBの平均ブチラール化度が40モル%未満であると、可塑性として用いられるトリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエートとの相溶性が悪くなるることがあり、逆にPVBの平均ブチラール化度が75モル%を超えるものは、PVB製造のプロセスが非常に長時間となることがあるので好ましくない。

50 【0027】尚、上記PVBの平均ブチラール化度は、

JIS K-6728「ポリビニルブチラール試験方法」に準拠して測定することが出来る。

【0028】第1発明による中間膜用組成物に可塑剤として含有されるトリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート（以下、「3GO」と記す）は、トリエチレングリコールと2-エチルヘキサノ酸を原料として製造することが出来る。具体的には、例えば、トリエチレングリコール1モルに対し、2-エチルヘキサノ酸2～2.5モルを添加し、さらに必要に応じて硫酸、塩酸、10 磷酸等の無機酸やp-トルエンスルホン酸、メタンスルホン酸等の有機酸等の触媒を全反応物質の0.01～5重量%添加して、エステル化反応させることにより、所望の3GOを得ることが出来る。上記エステル化反応は、トルエン、キシレン等の有機溶剤で反応系を希釈して行っても良いし、2-エチルヘキサノ酸自体を触媒として行っても良く、又、常温常圧で行っても良いが、反応の促進や生成水の除去等を考慮すると、50～300℃程度の加温下で行うことが好ましい。

【0029】上記で得られる3GOは、比較的高沸点（219℃/5mmHg）であるので、中間膜製造時の蒸発や合わせガラスとした後のトリム部からの蒸発が少なく、従って良好な作業性や優れたトリムカット性を得ることが出来る。又、耐加水分解性に優れるという利点も有する。

【0030】第1発明による中間膜用組成物においては、前記PVB100重量部に対し、上記3GO20～60重量部が含有されていることが必要である。

【0031】PVB100重量部に対する3GOの含有量が20重量部未満であると、得られる合わせガラスの耐貫通性が不十分となり、逆にPVB100重量部に対する3GOの含有量が60重量部を超えると、3GOのブリードアウト現象が発生して中間膜や合わせガラスの透明性が悪くなる。

【0032】第1発明においては、上記3GO100重量部に対し前記PVB8重量部を溶解して得られる溶液（以下、「PVB-3GO溶液」と記す）の曇り点が90～130℃であることが必要である。

【0033】上記PVB-3GO溶液の曇り点とは、JIS K-2269「原油及び石油製品の流動点並びに石油製品曇り点試験方法」に準拠して測定される曇り点であり、具体的には、PVB-3GO溶液を150℃以上に加熱した後、10～30℃の雰囲気下に放置して温度を降下させた時に、上記溶液の一部に曇りが発生し始める温度を意味する。

【0034】上記溶液の一部に曇りが発生し始める温度（曇り点）の測定方法としては、例えば、溶液の外観を目視で観察する方法、溶液のヘーズをヘーズメーターで測定する方法、予め曇りに関する複数段階の限度見本を作成しておき、この限度見本と対照して曇りを判定する方法等が挙げられる。

【0035】PVB-3GO溶液の上記曇り点が90℃未満であると、PVBに対する3GOの可塑化効果が大き過ぎることになり、得られる中間膜の耐ブロッキング性が低下したり、得られる合わせガラスの力学的特性や耐貫通性等が不十分となる。

【0036】逆にPVB-3GO溶液の上記曇り点が130℃を超えると、PVBと3GOとの相溶性が悪いことになり、得られる中間膜表面への3GOのブリードアウト現象が著しく激しくなり、実用性に欠けるものとなる。

【0037】次に、第2発明による中間膜用組成物は、上述した第1発明による中間膜用組成物において、PVBの平均ブチラール化度が65～72モル%であることを特徴とする。

【0038】上記PVBの平均ブチラール化度が65モル%未満であると、PVBと3GOとの相溶性が不十分となって、中間膜とした時に3GOのブリードアウト現象が起こり易くなり、逆にPVBの平均ブチラール化度が72モル%を超えるものは、PVB製造のプロセスが長時間となり、経済的に好ましくない。

【0039】次に、第3発明による中間膜用組成物は、前記第1発明又は上記第2発明による中間膜用組成物において、接着力調整剤として炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩が含有されていることを特徴とする。

【0040】中間膜用組成物中に炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩を含有させることにより、得られる中間膜とガラスとの接着力は初期及び経時後のいずれにおいても適正な範囲内に保持されるようになり、従って衝撃吸収性や耐貫通性等に優れる合わせガラスを得ることが出来る。

【0041】上記炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩としては、特に限定されるものではないが、例えば、蟻酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、ペンタン酸、2-エチルブタン酸、ヘプタン酸、オクタン酸、2-エチルヘキサノ酸等のマグネシウム塩が挙げられ、好適に用いられるが、なかでも酢酸マグネシウム、プロピオン酸マグネシウム、2-エチルブタン酸マグネシウム、2-エチルヘキサノ酸マグネシウム等がより好適に用いられる。

【0042】上記炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩は、単独で用いられても良いし、2種類以上が併用されても良い。

【0043】中間膜用組成物中における炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩の含有量は、特に限定されるものではないが、PVB100重量部に対し、上記マグネシウム塩0.01～0.5重量部であることが好ましく、より好ましくは0.02～0.2重量部である。

50 【0044】PVB100重量部に対する上記マグネシ

ウム塩の含有量が0.01重量部未満であると、十分な接着力調整効果を得られないことがあり、逆にPVB100重量部に対する上記マグネシウム塩の含有量が0.5重量部を超えると、得られる中間膜のガラスに対する接着力が低くなり過ぎたり、耐水性や透明性が損なわれることがある。

【0045】第1発明～第3発明による中間膜用組成物中には、必須成分であるPVB、3GO及び炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩以外に、3GO以外の可塑剤、炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩以外の接着力調整剤、紫外線吸収剤、光安定剤、酸化防止剤、界面活性剤、微粉シリカ等の無機充填剤、着色剤等のような合わせガラス用中間膜に一般的に用いられている各種添加剤の1種もしくは2種以上が含有されていても良い。

【0046】3GO以外の可塑剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、トリエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(3GH)、トリエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート(3G7)、トリエチレングリコールジカプリレート、トリエチレングリコールジ-n-オクトエート、テトラエチレングリコールジ-2-エチルブチレート(4GH)、テトラエチレングリコールジ-2-エチルヘキサノエート(4GO)、テトラエチレングリコールジ-n-ヘプタノエート(4G7)、ジヘキシルアジペート(DHA)、ジベンジルフタレート等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0047】炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩以外の接着力調整剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、カルボン酸のカリウム塩、ナトリウム塩等のようなカルボン酸の金属塩、エーテル変性シリコンオイル、エステル変性シリコンオイル、エポキシ変性シリコンオイル、アミン変性シリコンオイル等のような変性シリコンオイル等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0048】紫外線吸収剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、チバガイギー社製の商品名「チヌビンP」、「チヌビン320」、「チヌビン326」、「チヌビン328」等のようなベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0049】光安定剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、旭電化工業社製の商品名「アデカスタブLA-57」等のようなヒンダードアミン系光安定剤等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0050】酸化防止剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、住友化学工業社製の商品名「スミライザーBHT」、チバガイギー社製の商品名「イルガノックス1010」等のようなフェノール系酸化防止剤

等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0051】界面活性剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、ラウリル硫酸ナトリウム、アルキルベンゼンスルホン酸ナトリウム等が挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。

【0052】次に、第4発明による合わせガラス用中間膜は、上述した第1発明～第3発明のいずれかによる中間膜用組成物が製膜されてなることを特徴とする。

【0053】上記合わせガラス用中間膜の製造方法は、特に限定されるものではなく、例えば、第1発明～第3発明のいずれかによる中間膜用組成物を均一に混練した後、押出法、カレンダー法、プレス法、キャスト法、インフレーション法等によりシート状に製膜して中間膜用組成物の樹脂膜を成形し、これを中間膜とすれば良い。

【0054】上記中間膜用組成物の樹脂膜は、単層で中間膜とされても良いし、2枚以上が積層された状態で中間膜とされても良い。又、中間膜は単層で用いられても良いし、2枚以上が積層された状態で用いられても良い。

【0055】上記中間膜の全体の膜厚は、特に限定されるものではないが、合わせガラスとして必要な衝撃吸収性や耐貫通性、耐候性等を考慮すると、実用的には通常の合わせガラス用中間膜における膜厚と同様に、0.3～2mm程度であることが好ましい。

【0056】次に、第5発明による合わせガラスは、少なくとも一対のガラス間に、上記第4発明による合わせガラス用中間膜を介在させ、一体化させてなることを特徴とする。

【0057】上記ガラスは、通常の無機透明ガラスのみならず、ポリカーボネート板、ポリメチルメタクリレート板などの有機透明ガラスも包含する。

【0058】上記ガラスの種類としては、特に限定されるものではないが、例えば、フロート板ガラス、磨き板ガラス、型板ガラス、網入り板ガラス、線入り板ガラス、熱線吸収板ガラス、着色された板ガラス等の各種無機ガラス又は有機ガラスが挙げられ、これらの1種もしくは2種以上が好適に用いられる。又、ガラスの厚みは、用途によって適宜選択されれば良く、特に制限されるものではない。

【0059】第5発明による合わせガラスの製造方法は、特別なものではなく、通常の合わせガラスの場合と同様の製造方法が採用される。例えば、二枚の透明なガラス板の間に、第4発明による合わせガラス用中間膜を介在させ、これをゴムバッグに入れ、減圧吸引しながら約70～110℃の温度で予備接着し、次いで、オートクレーブもしくはプレスを用いて、約120～150℃の温度、約10～15kg/cm²の圧力で本接着を行い、一体化させることにより所望の合わせガラスを得る

ことが出来る。

【0060】

【作用】第1発明及び第2発明による中間膜用組成物は、主成分であるポリビニルブチラル樹脂に対し、可塑剤として比較的沸点の高いトリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエートの特定量が含有されてなり、且つ、上記トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエートに対し特定量の上記ポリビニルブチラル樹脂を溶解した溶液の曇り点が特定の範囲に規定されているので、中間膜表面への可塑剤のブリードアウトや中間膜の耐ブロッキング性の低下及び中間膜の白化現象等を未然に防止することが可能であると共に、トリムカット性に優れる合わせガラス用中間膜を得るに適する。

【0061】又、第3発明による中間膜用組成物は、上記第1発明又は第2発明による中間膜用組成物において、接着力調整剤として炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩が含有されているので、第1発明及び第2発明による中間膜用組成物が有する上記利点に加うるに、ガラスとの接着力が初期及び経時後のいずれにおいても適正な範囲内に保持されている合わせガラス用中間膜を得るに適する。

【0062】第4発明による合わせガラス用中間膜は、上記第1発明～第3発明のいずれかによる中間膜用組成物が製膜されてなるので、保管時や輸送時等における耐ブロッキング性に優れるのみならず、可塑剤のブリードアウトや白化現象の発生等が殆ど起こらず、且つ、ガラスとの接着力が初期及び経時後のいずれにおいても適正な範囲内に保持されていると共に、トリムカット性に優れる合わせガラスを得るに適する。

【0063】第5発明による合わせガラスは、上記第4発明による合わせガラス用中間膜を用いて製せられるので、透明性、衝撃吸収性、耐貫通性等の合わせガラスとして必要な基本性能に優れ、且つ、白化現象を殆ど起こさず、トリムカット性にも優れる。

【0064】

【発明の実施の形態】本発明をさらに詳しく説明するため以下に実施例を挙げるが、本発明はこれら実施例のみに限定されるものではない。尚、実施例中の「部」は「重量部」を意味する。

【0065】（実施例1）

【0066】（1）中間膜用組成物の作製

平均重合度1700、鹼化度99モル%のポリビニルアルコール（PVA）とブチルアルデヒドを原料として使用し、沈殿法で合成した平均ブチラル化度68.5モル%のポリビニルブチラル樹脂（PVB）100部に対し、可塑剤としてトリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート（3GO）40部及び接着力調整剤として2-エチルブタン酸マグネシウム0.13部（Mg濃度90ppm）を添加し、均一に攪拌混合して中間膜用組成物を得た。

【0067】（2）曇り点の測定

ガラス製試験管に上記3GO100部及び上記PVB8部を入れ、170℃に加熱してPVBを溶解させ、PVB-3GO溶液を得た。次いで、上記溶液の温度を熱電対で測定しながら攪拌冷却し、溶液の一部が曇り始めた温度（曇り点）を測定したところ、曇り点は113℃であった。

【0068】（3）合わせガラス用中間膜の製造

小型押出機（商品名「ラボプラスミル」、東洋精機社製）にTダイを装着し、押出温度80～180℃、金型出口温度200℃の条件で、（1）で得られた中間膜用組成物を押出し、製膜成形して厚み800μmの合わせガラス用中間膜を得た。

【0069】（4）合わせガラスの製造

上記で得られた合わせガラス用中間膜をフロートガラス（厚み2.4mm）2枚の間に挟み、ゴム製の真空バッグ内に入れて、20torrの真空度で20分間保持した後、そのままの状態で90℃のオープン内に30分間保持して予備接着した。次いで、予備接着された積層体をオートクレーブ中で温度150℃、圧力13kg/cm²の条件で熱プレスして本接着し、合わせガラスを得た。

【0070】（5）評価

上記で得られた合わせガラス用中間膜の性能（①相溶性、②耐ブロッキング性）、及び、上記で得られた合わせガラスの性能（③トリムカット性、④接着力（パンメル値）、⑤耐湿性）を以下の方法で評価した。その結果は表2に示すとおりであった。

【0071】①相溶性：合わせガラス用中間膜を23℃～25%RHの雰囲気下に3日間放置した後、吸い取り紙で中間膜表面にブリードアウトした可塑剤を吸い取り、シミの有無を目視で観察して、下記判定基準で相溶性を評価した。

〔判定基準〕

○……シミは認められず、相溶性は良好であった

×……多量のシミが認められ、相溶性は不良であった

【0072】②耐ブロッキング性：合わせガラス用中間膜を10mm×25mmの長方形に裁断して2枚重ね、その上に2kgの荷重を載せて25時間放置した後、引張試験機を用いて、180度角剥離強度を測定し、下記判定基準で耐ブロッキング性を評価した。尚、剥離強度はn=3の平均値とした。

〔判定基準〕

○……剥離強度100（g/cm）未満、耐ブロッキング性良好

×……剥離強度100（g/cm）以上、耐ブロッキング性不良

【0073】③トリムカット性：合わせガラスの端部からはみ出している中間膜（トリム）をカッターナイフでカットする作業を行い、下記判定基準でトリムカット性

を評価した。

【判定基準】

○……容易にカット出来た

×……中間膜が硬くて、カットが困難であった

【0074】④接着力（パンメル値）： -18 ± 0.6 ℃の温度下に16時間放置して調温した合わせガラスを頭部が0.45Kgのハンマーで叩いて、ガラスの粒子径が6mm以下となるまで粉碎した。次いで、ガラスが部分剥離した後の中間膜の露出度を予めグレード付けした限度見本で判定し、その結果を下記表1に示す判定基準に従ってパンメル値として表し、接着力とした。上記パンメル値が大きいほど中間膜とガラスとの接着力も大きく、パンメル値が小さいほど中間膜とガラスとの接着力も小さい。

【0075】

【表1】

【判定基準】

中間膜の露出度（面積％）	パンメル値
100	0
90	1
85	2
60	3
40	4
20	5
10	6
5	7
2以下	8

【0076】⑤耐湿性：合わせガラスを50℃-95%RHの雰囲気下に4週間放置した後に取り出して、白化している部分の距離〔白化距離（mm）〕を合わせガラスの同縁端部から測定した。

【0077】（実施例2）中間膜用組成物の作製において、接着力調整剤として、2-エチルブタン酸マグネシウム0.13部の代わりに、酢酸マグネシウム0.052部（Mg濃度60ppm）を添加したこと以外は実施例1と同様にして、中間膜用組成物を得た。

【0078】（実施例3）中間膜用組成物の作製において、PVBとして、平均ブチラール化度68.5モル%のPVB100部の代わりに、平均ブチラール化度71.0モル%のPVB100部を用いたこと以外は実施例1と同様にして、中間膜用組成物を得た。尚、3GO100部に対し上記PVB8部を溶解したPVB-3GO溶液の曇り点を実施例1の場合と同様にして測定したところ、曇り点は101℃であった。

【0079】（実施例4）中間膜用組成物の作製において、PVBとして、平均ブチラール化度68.5モル%のPVB100部の代わりに、平均ブチラール化度67.0モル%のPVB100部を用いたこと以外は実施例1と同様にして、中間膜用組成物を得た。尚、3GO

100部に対し上記PVB8部を溶解したPVB-3GO溶液の曇り点を実施例1の場合と同様にして測定したところ、曇り点は123℃であった。

【0080】（比較例1）中間膜用組成物の作製において、PVBとして、平均ブチラール化度68.5モル%のPVB100部の代わりに、平均ブチラール化度64.1モル%のPVB100部を用いたこと以外は実施例1と同様にして、中間膜用組成物を得た。尚、3GO100部に対し上記PVB8部を溶解したPVB-3GO溶液の曇り点を実施例1の場合と同様にして測定したところ、曇り点は137℃であった。

【0081】（比較例2）中間膜用組成物の作製において、可塑剤として、3GO40部の代わりに、沸点196℃/5mmHgのトリエチレングリコールジ2-エチルブチレート（3GH）40部を用いたこと以外は実施例1と同様にして、中間膜用組成物を得た。尚、上記3GH100部に対しPVB8部を溶解したPVB-3GH溶液の曇り点を実施例1の場合と同様にして測定したところ、曇り点は68℃であった。

20 【0082】（比較例3）中間膜用組成物の作製において、接着力調整剤として、2-エチルブタン酸マグネシウム0.13部の代わりに、酢酸カリウム0.106部（K濃度300ppm）を添加したこと以外は比較例2と同様にして、中間膜用組成物を得た。

【0083】（比較例4）中間膜用組成物の作製において、PVBとして、平均ブチラール化度68.5モル%のPVB100部の代わりに、平均ブチラール化度75.6モル%のPVB100部を用いたこと以外は実施例1と同様にして、中間膜用組成物を得た。尚、3GO100部に対し上記PVB8部を溶解した3GO-PVB溶液の曇り点を実施例1の場合と同様にして測定したところ、曇り点は84℃であった。

【0084】実施例2～4、及び、比較例1～4で得られた中間膜用組成物を用い、実施例1の場合と同様にして、合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの製造を行った。但し、比較例1の中間膜用組成物を用いて製造した合わせガラス用中間膜は、可塑剤（3GO）が激しくブリードアウトしていたので、合わせガラスの製造は行わなかった。

40 【0085】実施例2～4、及び、比較例2～4で得られた合わせガラス用中間膜及び合わせガラスの性能を実施例1の場合と同様にして評価した。その結果は表2に示すとおりであった。尚、比較例1で得られた合わせガラス用中間膜は、可塑剤（3GO）が激しくブリードアウトしていたので、耐ブロッキング性の評価は行わなかった。

【0086】

【表2】

				実 施 例				比 較 例			
				1	2	3	4	1	2	3	4
中間膜用組成物の配合組成及び曇り点	ポリビニルブチラール樹脂	平均ブチラール化度	68.5%	100	100				100	100	
			71.0%			100					
			67.0%				100				
			64.1%					100			
			75.8%								100
	可塑剤	3GO		40	40	40	40	40			40
		3GH							40	40	
	接着力調整剤	2-エチルヘキサン酸マグネシウム		0.130		0.130	0.130	0.130	0.130		0.130
		酢酸マグネシウム			0.052						
		酢酸カリウム								0.106	
	曇り点(℃)			113	113	101	123	137	68	68	84
評価結果	中間膜	相溶性		○	○	○	○	×	○	○	○
		耐ブロッキング性		○	○	○	○	評価外	○	○	×
	合わせガラス	トリムカット性		○	○	○	○	評価外	×	×	○
		接着力(パンメル値)		6	4	6	5	評価外	4	5	5
		耐湿性〔白化距離(mm)〕		0	0	0	0	評価外	0	1.5	0

(注) - 1 3GO: トリエチレングリコールジ2-エチルヘキサノエート(沸点219℃/5mmHg)
 (注) - 2 3GH: トリエチレングリコールジ2-エチルブチレート(沸点198℃/5mmHg)

【0087】表2から明らかなように、本発明による実施例1～4の中間膜用組成物を用いて製せられた実施例1～4の合わせガラス用中間膜は、ポリビニルブチラール樹脂(PVB)と可塑剤(3GO)との相溶性が良好であり、優れた耐ブロッキング性を示した。

【0088】又、上記実施例1～4の合わせガラス用中間膜を用いて製せられた実施例1～4の合わせガラスは、トリムカット性、接着力(パンメル値)及び耐湿性(耐白化性)のいずれにも優れていた。

【0089】これに対し、PVB-3GO溶液の曇り点が130℃を超えていた比較例1の中間膜用組成物を用いて製せられた比較例1の合わせガラス用中間膜は、PVBと3GOとの相溶性が悪かったため、中間膜表面への3GOのブリードアウトが極めて激しく、実用性に欠けた。

【0090】又、3GOの代わりに、比較的沸点の低い可塑剤(3GH)を用いた比較例2の中間膜用組成物からなる合わせガラス用中間膜を用いて製せられた比較例2の合わせガラスは、トリムカット性が悪かった。

【0091】さらに、可塑剤として3GHを用い、接着力調整剤として、炭素数2～10のカルボン酸のマグネシウム塩の代わりに、カルボン酸のカリウム塩(酢酸カ

リウム)を用いた比較例3の中間膜用組成物からなる合わせガラス用中間膜を用いて製せられた比較例3の合わせガラスは、トリムカット性が悪く、且つ、吸湿による白化現象の発生が激しかった。

【0092】さらに又、PVB-3GO溶液の曇り点が90℃未満であった比較例4の中間膜用組成物を用いて製せられた比較例4の合わせガラス用中間膜は、耐ブロッキング性が悪かった。

【0093】

【発明の効果】以上述べたように、本発明による中間膜用組成物を用いて製せられる合わせガラス用中間膜は、ポリビニルブチラール樹脂と可塑剤との相溶性が良好であるので、中間膜表面への可塑剤のブリードアウトが殆ど無く、且つ、保管時や輸送時における耐ブロッキング性に優れる。

【0094】又、上記合わせガラス用中間膜を用いて製せられる本発明の合わせガラスは、トリムカット性に優れるので作業性が良く、且つ、中間膜とガラスとの接着力が適正な範囲内に保持されているので衝撃吸収性や耐貫通性等の合わせガラスとしての基本性能に優れ、耐湿性(耐白化性)にも優れているので、自動車用や建築用等として好適に用いられる。